

(19)



Europäisches Patentamt  
European Patent Office  
Office européen des brevets

(11)

Veröffentlichungsnummer:

**0 326 979**  
**A2**

(12)

## EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(21)

Anmeldenummer: 89101500.0

(51)

Int. Cl.<sup>4</sup>: **C08L 69/00** , //(C08L69/00,  
51:04,25:08,33:12)

(22)

Anmeldetag: 28.01.89

(30)

Priorität: 05.02.88 DE 3803458

(43)

Veröffentlichungstag der Anmeldung:  
09.08.89 Patentblatt 89/32

(84)

Benannte Vertragsstaaten:  
BE DE FR GB NL

(71)

Anmelder: **BASF Aktiengesellschaft**  
**Carl-Bosch-Strasse 38**  
**D-6700 Ludwigshafen(DE)**

(72)

Erfinder: **Mühlbach, Klaus, Dr.**  
**Dr.-Heinrich-Winter-Strasse 19**  
**D-6148 Heppenheim(DE)**  
Erfinder: **Brandt, Hermann, Dr.**  
**Keltenstrasse 30**  
**D-6707 Schifferstadt(DE)**  
Erfinder: **Ruppich, Karl**  
**Koenigsbacher Strasse 134**  
**D-6700 Ludwigshafen(DE)**

(54)

**Thermoplastische Formmasse mit verbesserter Fließfähigkeit und ihre Verwendung.**

(57)

Die Erfindung betrifft thermoplastische Formmasse mit verbesserter Fließfähigkeit, enthaltend, jeweils bezogen auf die Formmasse aus A, B und C,

A) 20 bis 85 Gew.% eines thermoplastischen aromatischen Polycarbonats,

B) 5 bis 50 Gew.% eines Pfropfpolymerisats aus

b<sub>1</sub>) mindestens einem Elastomeren (Kautschuk), das mindestens 40 Gew.%, bezogen auf B ausmacht und eine mittlere Teilchengröße, bestimmt als d<sub>50</sub>-Wert der integralen Masseverteilung, im Bereich von 50 bis 700 nm aufweist,

wobei das Elastomere b<sub>1</sub>) einpolymerisiert enthält, jeweils bezogen auf b<sub>1</sub>),

b<sub>1a1</sub>) 50 bis 100 Gew.% mindestens eines Diens aus der Gruppe der konjugierten Diene mit 4 oder 5 C-Atomen,

b<sub>1a2</sub>) 0 bis 50 Gew.% mindestens eines Monomeren aus der Gruppe der Alkylacrylate oder Alkylmethacrylate mit 1 bis 8 C-Atomen im Alkylrest oder Styrol oder Acrylnitril und

b<sub>2</sub>) einer ersten, auf das Elastomere gepfropften Hülle, die, bezogen auf B, 1 bis 40 Gew.%, ausmacht, sowie

b<sub>3</sub>) sowie einer weiteren darauf aufpolymerisierten Hülle, die, bezogen auf B, 20 bis 50 Gew.% ausmacht,

C) 5 bis 70 Gew.% eines thermoplastischen Copolymerisats aus, jeweils bezogen auf C,

c<sub>1</sub>) 50 bis 95 Gew.% Styrol, α-Methylstyrol, kernsubstituiertem Styrol und/oder Methylmethacrylat und

c<sub>2</sub>) 50 bis 5 Gew.% (Meth)Acrylnitril, Methylmethacrylat, Maleinsäureanhydrid und/oder N-substituiertem Maleinimid,

das dadurch gekennzeichnet ist, daß die 1. Pfropfhülle b<sub>2</sub>) aufgebaut ist aus, jeweils bezogen auf b<sub>2</sub>)

b<sub>2a1</sub>) 45 bis 99,99 Gew.% mindestens eines Alkylacrylats oder Alkylmethacrylats mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen im Alkylrest

b<sub>2a2</sub>) 0 bis 50 Gew.% mindestens eines copolymerisierbaren olefinisch ungesättigten Monomeren und

b<sub>2a3</sub>) 0,01 bis 5 Gew.% eines copolymerisierbaren, polyfunktionellen, vernetzenden Monomeren und ferner die weitere Pfropfhülle b<sub>3</sub>) aufgebaut ist aus, jeweils bezogen auf b<sub>3</sub>),

b<sub>3a1</sub>) 50 bis 95 Gew.% Styrol, α-Methylstyrol, kernsubstituiertem Styrol und/oder Methylmethacrylat und

EP 0 326 979 A2

b<sub>3a2</sub>) 50 bis 5 Gew.% (Meth)Acrylnitril, Methylmethacrylat, Maleinsäureanhydrid und/oder N-substituiertem Maleinimid.

# Thermoplastische Formmasse mit verbesserter Fließfähigkeit und ihre Verwendung

Die Erfindung betrifft eine thermoplastische Formmasse aus einem aromatischen Polycarbonat, einem Ppropfmischpolymerisat auf Basis von ABS, dessen Hülle zweistufig aufgebaut ist, und einem thermoplastischen Copolymerisat.

Derartige Mischungen sind z.B. beschrieben in

- 5 (1) DE AS 11 70 141
- (2) DE-AS 18 10 993
- (3) DE-OS 34 14 119
- (4) US-PS 4 082 895 und
- (5) DE-PS 3 447 249.

10

Die aus (1) und (2) bekannten PC/ABS-Mischungen zeichnen sich in der Regel durch gute mechanische Eigenschaften, insbesondere gute axiale und multiaxiale Zähigkeiten bis zu tiefen Temperaturen und hohe Vicat-Temperaturen aus. Die Haupteinsatzgebiete sind der Kfz-Sektor, sowie die Elektro- und Haushaltsgeräteindustrie. Die Anforderungen an die Materialien umfassen hohe Zähigkeit - auch bei tiefen Temperaturen -, leichte Verarbeitbarkeit - insbesondere bei kompliziert geformten Werkstücken - sowie ausgezeichnete Oberflächeneigenschaften.

15

In (3) und (4) sind PC/ABS-Mischungen beschrieben, bei denen das Ppropfmischpolymerisat mehrstufig aufgebaut ist. In (5) ist ein Ppropfmischpolymerisat mit einem vernetzten Butadienkern beschrieben, das eine dreistufig aufgebaute Hülle aufweist.

20

Die aus (3) und (4) bekannten Formmassen weisen eine gute Zähigkeit auf, zeigen aber noch nicht befriedigende Fließeigenschaften.

Es bestand daher die Aufgabe, Mischungen von Ppropfmischpolymerisaten auf Basis von ABS mit PC vorzuschlagen, die eine gute Zähigkeit und eine verbesserte Fließfähigkeit besitzen.

25

Die Lösung dieser Aufgabe gelingt - allgemein gesprochen - mit einer Formmasse aus Mischungen mit Ppropfkautschuken auf Basis konjugierter Diene mit zweischaliger Hülle aus einem Acrylat mit 2 bis 8 C-Atomen und vinylaromatischen Monomeren und ethylenisch ungesättigten Comonomeren. Solche Formmassen weisen eine deutlich bessere Fließeigenschaft bei vergleichbarer Zähigkeit auf als solche mit bekannten Ppropfkautschuken.

30

Unmittelbarer Erfindungsgegenstand ist eine thermoplastische Formmasse mit verbesserter Fließfähigkeit, enthaltend, jeweils bezogen auf die Formmasse aus A, B und C,

A) 20 bis 85 Gew.% eines thermoplastischen aromatischen Polycarbonats,

B) 5 bis 50 Gew.% eines Ppropfpolymerisats aus

35

b<sub>1</sub>) mindestens einem Elastomeren (Kautschuk), das mindestens 40 Gew.%, bezogen auf B ausmacht und eine mittlere Teilchengröße, bestimmt als d<sub>50</sub>-Wert der integralen Masseverteilung, im Bereich von 50 bis 700 nm aufweist,

40

wobei das Elastomere b<sub>1</sub>) einpolymerisiert enthält, jeweils bezogen auf b<sub>1</sub>),

b<sub>1a1</sub>) 50 bis 100 Gew.% mindestens eines Diens aus der Gruppe der konjugierten Diene mit 4 oder 5 C-Atomen,

b<sub>1a2</sub>) 0 bis 50 Gew.% mindestens eines Monomeren aus der Gruppe der Alkylacrylate oder Alkylmethacrylate mit 1 bis 8 C-Atomen im Alkylrest oder Styrol oder Acrylnitril

45

und

b<sub>2</sub>) einer ersten, auf das Elastomere gepropften Hülle, die, bezogen auf B, 1 bis 40 Gew.%, ausmacht, sowie

b<sub>3</sub>) sowie einer weiteren darauf aufpolymerisierten Hülle, die, bezogen auf B, 20 bis 50 Gew.% ausmacht,

50

C) 5 bis 70 Gew.% eines thermoplastischen Copolymerisats aus, jeweils bezogen auf C,

c<sub>1</sub>) 50 bis 95 Gew.% Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, kernsubstituiertem Styrol und/oder Methylmethacrylat und

c<sub>2</sub>) 50 bis 5 Gew.% (Meth)Acrylnitril, Methylmethacrylat, Maleinsäureanhydrid und/oder N-substituiertem Maleinimid,

das dadurch gekennzeichnet ist, daß die 1. Ppropfhülle b<sub>2</sub>) aufgebaut ist aus, jeweils bezogen auf b<sub>2</sub>)

55

b<sub>2a1</sub>) 45 bis 99,99 Gew.% mindestens eines Alkylacrylats oder Alkylmethacrylats mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen im Alkylrest

b<sub>2a2</sub>) 0 bis 50 Gew.% mindestens eines copolymerisierbaren olefinisch ungesättigten Monomeren und

b<sub>2a3</sub>) 0,01 bis 5 Gew.% eines copolymerisierbaren, polyfunktionellen, vernetzenden Monomeren und ferner die weitere Ppropfhülle b<sub>3</sub>) aufgebaut ist aus, jeweils bezogen auf b<sub>3</sub>),

b<sub>3a1</sub>) 50 bis 95 Gew.% Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, kernsubstituiertem Styrol und/oder Methylmethacrylat und  
 b<sub>3a2</sub>) 50 bis 5 Gew.% (Meth)Acrylnitril, Methylmethacrylat, Maleinsäureanhydrid und/oder N-substituiertem  
 Maleinimid.

Die erfindungsgemäße Formmasse enthält z.B. folgende Anteile der Komponenten (in Gew.%, jeweils bezogen auf die Formmasse aus A, B und C):

Komponente A: 20 bis 85, insbesondere 30 bis 70;

Komponente B: 5 bis 50, insbesondere 10 bis 35;

Komponente C: 5 bis 70, insbesondere 10 bis 40.

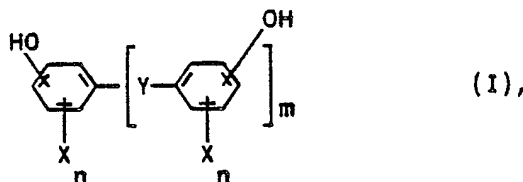
Bezogen auf 100 Gew.-Teile der Formmasse aus A, B und C, kann sie außerdem 0,1 bis 40 Gew.-Teile, vorzugsweise 0,4 bis 35 Gew.-Teile üblicher Zusatzstoffe (Komponente D) enthalten und kann ferner abgemischt werden z.B. mit 5 bis 60, vorzugsweise 7 bis 40 Gew.-Teilen, jeweils bezogen auf A + B + C, einer Formmasse in Form eines weiteren Ppropfmischpolymerisates auf Basis von ABS (Komponente E).

15

#### Komponente A

Erfindungsgemäß geeignete, thermoplastische, aromatische Polycarbonate A sind solche auf Basis der Diphenole (Bisphenole) der Formel (I)

20



25

worin Y eine Einfachbindung, C<sub>1</sub>-C<sub>5</sub>-Alkyl, C<sub>2</sub>-C<sub>5</sub>-Alkyliden, C<sub>5</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyliden, -S- oder -SO<sub>2</sub>-, Chlor, Brom oder Methyl und m null oder eins und n null, eins oder zwei ist.

30

Erfindungsgemäß geeignete Polycarbonate gemäß Komponente A sind sowohl Homopolycarbonate als auch Copolycarbonate.

Die Diphenole der Formel (I) sind entweder bekannt oder nach bekannten Verfahren herstellbar.

Die Herstellung der erfindungsgemäß geeigneten Polycarbonate gemäß Komponente A ist bekannt und kann beispielsweise nach dem Phasengrenzflächenverfahren oder nach dem Verfahren in homogener Phase (dem sogenannten Pyridinverfahren) erfolgen, wobei das jeweils einzustellende Molekulargewicht in bekannter Weise durch eine entsprechende Menge an bekannten Kettenabbrechern erzielt wird (bezüglich polydiorganosiloxanhaltigen Polycarbonaten siehe beispielsweise DE-OS 33 34 782).

35

Geeignete Kettenabbrecher sind beispielsweise Phenol, p-Chlorphenol, p-tert.-Butylphenol oder 2,4,6-Tribromphenol, aber auch langkettige Alkylphenole wie 4-(1,3-Tetramethyl-butyl)-phenol, gemäß DE-A-2 842 005 oder Monoalkylphenole oder Dialkylphenole mit insgesamt 8 bis 20 C-Atomen in den Alkylsubstituenten gemäß DE-A-P 35 06 472 wie beispielsweise p-Nonylphenyl, 3,5-di-tert.-Butylphenol, p-tert.-Octylphenol, p-Dodecylphenol, 2-(3,5-dimethyl-heptyl)-phenol und 4-(3,5-Dimethylheptyl)-phenol.

40

Die erfindungsgemäß geeigneten Polycarbonate gemäß Komponente A haben mittlere Gewichtsmittelmolekulargewichte (M<sub>w</sub>, gemessen beispielsweise durch Ultrazentrifugation oder Streulichtmessung) von 10 000 bis 200 000, vorzugsweise von 20 000 bis 80 000. Dies entspricht relativen Viskositäten  $\eta_{rel}$  von 0,8 bis 2,4 (ml/g), insbesondere von 1,1 bis 1,6 (ml/g).

45

Geeignete Diphenole der Formel (I) sind beispielsweise Hydrochinon, Resorcin, 4,4'-Dihydroxydiphenyl, 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-propan, 2,4-Bis-(4-hydroxyphenyl)-2-methylbutan, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-cyclohexan, 2,2-Bis-(3-chlor-4-hydroxyphenyl)-propan, 2,2-Bis-(3,5-dichlor-4-hydroxyphenyl)-propan und 2,2-Bis-(3,5-dibrom-4-hydroxyphenyl)-propan, 2,2-Bis-(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-propan.

50

Bevorzugte Diphenole der Formel (I) sind 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-propan, 2,2-Bis-(3,5-dichlor-4-hydroxyphenyl)-propan, 2,2-Bis-(3,5-dibrom-4-hydroxyphenyl)-propan, 2,2-Bis-(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-propan und 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-cyclohexan.

55

Die erfindungsgemäß geeigneten Polycarbonate gemäß Komponente A können in bekannter Weise verzweigt sein, und zwar vorzugsweise durch den Einbau von 0,05 bis 2,0 Mol.%, bezogen auf die Summe der eingesetzten Diphenole, an drei- oder mehr als dreifunktionellen Verbindungen, beispielsweise solchen mit drei oder mehr als drei phenolischen OH-Gruppen.

Bevorzugte Polycarbonate sind neben dem Bisphenol A-Homopolycarbonat die Copolycarbonate von Bisphenol A mit bis zu 15 Mol.%, bezogen auf die Molsumme an Diphenolen, an 2,2-Bis-(3,5-dibrom-4-hydroxyphenyl)-propan.

Die Polycarbonate können auch ganz oder teilweise durch Polyestercarbonate (Copolymere, die sowohl Ester als auch Carbonatstrukturen enthalten) ersetzt werden.

#### Komponente B

Als Pfpfpmischpolymerisat B wird ein Emulsionspfpfpcopolymerisat verwendet, das eine zweistufig aufgebaute Hartphase als Pfpfphülle und eine Elastomerphase  $b_1$ ) als Pfpfgrundlage aufweist.

Die Elastomerphase  $b_1$ ) ist ein Homo- oder Copolymerisat, das im wesentlichen aus einem aliphatischen Dien mit 4 bis 5 C-Atomen aufgebaut ist oder zusätzlich zu diesem(n) mindestens ein Monomeres eines Acrylsäurealkylesters mit 1 bis 8 C-Atomen im Alkylrest oder Styrol oder Acrylnitril enthalten kann.

Die als Pfpfgrundlage für das Pfpfpmischpolymerisat B dienende Elastomerphase weist eine mittlere Teilchengröße im Bereich von 0,05 bis 0,7  $\mu\text{m}$  ( $d_{50}$ -Wert der integralen Masseverteilung) vorzugsweise von 0,1 bis 0,45  $\mu\text{m}$  auf. Sie kann monomodal oder bimodal aufgebaut sein, d.h. einen Anteil von Teilchen im Bereich von 0,05 bis 0,18  $\mu\text{m}$  und einen weiteren im Bereich von 0,25 bis 0,5  $\mu\text{m}$  aufweisen, wie dies z.B. in US 4 430 478 beschrieben ist.

Es ist möglich, mit Hilfe der sog. Saatlatexfahrweise die bimodale Verteilung der Partikel der Elastomerphase der Pfpfgrundlage des Pfpfpmischpolymerisates B zu erzeugen. Jedoch ist eine solche Präparation, verglichen mit der Agglomeration zeitaufwendiger, da zusätzlich ein Saatlatex und danach vergrößerte Teilchen hergestellt werden müssen und die Polymerisation von Butadien auf einen Saatlatex zur Herstellung größerer Teilchen sehr lange dauert.

Im einzelnen ist das Pfpfpmischpolymerisat B aufgebaut aus

$b_1$ ) mindestens einem Elastomeren (Kautschuk), das mindestens 40 bis annähernd 80, insbesondere 40 bis 65 Gew.%, bezogen auf B ausmacht

wobei das Elastomere  $b_1$ ) einpolymerisiert enthält, jeweils bezogen auf  $b_1$ ),

$b_{1a1}$ ) 50 bis 100 Gew.% mindestens eines Diens aus der Gruppe der konjugierten Diene mit 4 oder 5 C-Atomen,

$b_{1a2}$ ) 0 bis 50 Gew.% mindestens eines Monomeren aus der Gruppe der Alkylacrylate oder Alkylmethacrylate mit 1 bis 8 C-Atomen im Alkylrest oder Styrol oder Acrylnitril.

Das Pfpfpmischpolymerisat B enthält ferner

$b_2$ ) eine erste auf Elastomere gepfropfte Hülle, die 1 bis 40 Gew.%, vorzugsweise 2 bis 25 Gew.%, bezogen auf B, ausmacht.

Die 1. Pfpfphülle  $b_2$ ) ist ihrerseits aufgebaut aus, jeweils bezogen auf  $b_2$ ),

$b_{2a1}$ ) 45 bis 99,99 Gew.% mindestens eines Alkylacrylats mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen im Alkylrest

$b_{2a2}$ ) 0 bis 50 Gew.% mindestens eines copolymerisierbaren ungesättigten Monomeren

und

$b_{2a3}$ ) 0,01 bis 5 Gew.% eines copolymerisierbaren, polyfunktionellen, vernetzenden Monomeren.

Als Monomere  $b_{2a1}$  bis  $b_{2a3}$  kommen in Betracht:

$b_{2a1}$ : Acrylate mit 1 bis 8 C-Atomen im linearen, verzweigten oder cyclischen Alkoholteil, vorzugsweise Ethyl-, Butyl- und 2-Ethylhexylacrylat oder Methacrylate mit 1 bis 8 C-Atomen, insbesondere Methylmethacrylat,

$b_{2a2}$ : Vinylacetat, Acrylnitril, Styrol, Methmethacrylat und/oder Vinylether,

$b_{2a3}$ : vernetzend wirkende, ethylenisch ungesättigte Monomere, wie Alkylendioldi(meth)-acrylate, Polyesterdi-(meth)-acrylat, Divinylbenzol, Trivinylbenzol, Triallylcyanurat, Tricyclodecenyacrylat, Allyl-(meth)-acrylat, Butadien oder Isopren.

Schließlich weist das Pfpfpmischpolymerisat eine weitere Hülle  $b_3$ ) auf, die, bezogen auf B, 20 bis 50 Gew.%, vorzugsweise 30 bis 50 Gew.%, ausmacht.

Die weitere Pfpfphülle  $b_3$ ) ist aufgebaut aus, jeweils bezogen auf  $b_3$ )

$b_{3a1}$ ) 50 bis 95 Gew.%, vorzugsweise 60 bis 85 Gew.% Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, kernsubstituiertem Styrol, Methylmethacrylat oder Mischungen daraus

und

$b_{3a2}$ ) 50 bis 5 Gew.%, vorzugsweise 15 bis 40 Gew.% (Meth)Acrylnitril, Methylmethacrylat, Maleinsäureanhydrid, N-substituiertem Maleinimid oder Mischungen daraus.

Als Monomere  $b_{3a2}$ ) kommen insbesondere (Meth)Acrylnitril oder Methylmethacrylat oder Mischungen dieser Monomeren in Betracht. Bevorzugt wird AN. Als vinylaromatisches Monomeres  $b_{3a1}$  wird bevorzugt Styrol verwendet. Es kann jedoch auch Styrol in Mischung mit  $\alpha$ -Methylstyrol oder p-Methylstyrol angewendet werden, falls wärmeformbeständigere Produkte gewünscht werden, jedoch ist dies nicht bevorzugt. Zur Herstellung von Formmassen mit hoher Wärmeformbeständigkeit kann (Meth)acrylnitril oder MMA ganz oder teilweise durch Maleinsäureanhydrid oder N-substituierte Maleinimide ersetzt werden.

Die Herstellung des Pfpfpmischpolymerisates erfolgt, ausgehend von der in Emulsion erzeugten Pfpfgrundlage, so daß zunächst die Monomeren der 1. Hülle zugegeben werden und in bekannter Weise in Emulsion aufgebracht werden.

Auf dieses im wesentlichen mit Acrylaten gepfropfte Elastomere wird nun in einem zweiten Schritt die 2. Pfpfhülle aufpolymerisiert.

Die Pfpfung in beiden Verfahrensstufen wird dabei so durchgeführt, daß zu der wäßrigen Emulsion der jeweiligen Pfpfgrundlage die Monomerenmischung (das Monomere) der den Pfpfreis bildenden Monomeren im vorstehend genannten Gewichtsverhältnis zugegeben wird. Bei der Pfpfung können dabei gegebenenfalls weitere Emulgatoren zugesetzt werden. Die Polymerisation wird durch radikalbildende Initiatoren, wie Azoverbindungen oder Peroxide, ausgelöst. Die Polymerisationstemperatur kann zwischen 30 bis 100 °C liegen. Für die Durchführung der Polymerisation können übliche Hilfsstoffe wie Regler und Stabilisatoren zugegen sein.

#### Komponente C

Das Copolymerisat C ist aufgebaut aus Monomeren, die eine harte Phase bilden. Es kann auf üblichem Wege durch Polymerisieren eines vinylaromatischen Monomeren  $C_1$  mit 8 bis 12 C-Atomen, MMA oder Mischungen daraus in Anteilen von 95 bis 50 Gew.%, insbesondere 80 bis 65 Gew.%, in Mischung mit einem ethylenisch ungesättigten Monomeren  $C_2$  in Anteilen von 50 bis 5, insbesondere von 35 bis 20 Gew.% hergestellt werden. Als vinylaromatische Monomere  $C_1$  kommen Styrol sowie die Alkylstyrole, hierbei insbesondere das  $\alpha$ -Methylstyrol oder das p-Methylstyrol, in Frage.  $\alpha$ -Methylstyrol wird vorwiegend dann eingesetzt, wenn hohe Wärmeformbeständigkeit der Formmassen eingestellt werden soll. Üblicherweise werden für diesen Zweck Mischungen von Styrol und Acrylnitril mit bis zu 30 Gew.%  $\alpha$ -Methylstyrol angewendet. Als ethylenisch ungesättigte Monomere kommen (Meth)acrylnitril, MMA, Maleinsäureanhydrid, N-substituierte Maleinimide oder Mischungen daraus in Frage. Bevorzugt werden Copolymerisate angewendet, die 20 bis 35 Gew.% Acrylnitril und 80 bis 65 Gew.% Styrol enthalten. Zur Herstellung von Formmassen mit hoher Wärmeformbeständigkeit kann man aber auch in der Gruppe  $C_2$  (Meth)acrylnitril oder MMA ganz oder teilweise durch Maleinsäureanhydrid oder N-substituierte Maleinimide ersetzt werden. Diese Copolymerisate sind im Handel erhältlich und können z.B. nach der Lehre der DE-AS 10 01 001 bzw. nach der Lehre der DE-PS 10 03 436 hergestellt werden. Der Molekulargewichtsbereich des Copolymerisats beträgt 80 000 bis 250 000 (Gewichtsmittel  $\overline{M}_w$  aus Lichtstreuung. Dies entspricht Viskositätszahlen, VZ, von 35 bis 130 (ml/g), insbesondere 50 bis 100 (ml/g).

#### Komponente D

Die erfindungsgemäße Formmasse kann als Komponente C Zusatzstoffe enthalten, die für Polycarbonat, SAN-Polymerisate und Pfpfpmischpolymerisate auf Basis von ABS etc. oder deren Mischungen typisch und gebräuchlich sind. Als solche Zusatzstoffe seien beispielsweise genannt: Füllstoffe - insbesondere Glas- und Kohlenstofffasern -, sowie Materialien zur Erhöhung der Abschirmung von elektromagnetischen Wellen (z.B. Metallflocken, -pulver, -fasern, metallbeschichtete Füllstoffe), Farbstoffe, Pigmente, Antistatika, Antioxidantien, Stabilisatoren, auch Flammenschutzmittel und insbesondere die Schmiermittel, die für die Weiterverarbeitung der Formmasse, z.B. bei der Herstellung von Formkörpern bzw. Formteilen erforderlich sind. Von den Schmiermitteln sind insbesondere diejenigen auf Basis von N,N'-Bisstearylethylendiamin (Accrawachs) zu nennen, die bevorzugt angewendet werden, um die Verarbeitungseigenschaften der Formmassen auf einem hohen Niveau zu halten. Diese sind überraschenderweise besser geeignet als Silikonöle, Pluriole® und die Stearate.

Weiterhin kann die Formmasse Treibmittel enthalten zur Herstellung von geschäumten Teilen (z.B.

Azodicarbonamid).

Bei den Flammenschutzmitteln kann es sich im weitesten Sinne handeln um Halogen, vorzugsweise Brom enthaltende nieder- und hochmolekulare (aromatische) Verbindungen, ausgewählt aus den Klassen der Aryle, Arylether, Arylalkylether, Arylamine, Arylimide, Arylanhydride, Phenole, Arylalkylimide und Arylsiloxane. Die folgende Zusammenstellung zeigt charakteristische Beispiele; sie beinhaltet keine Einschränkung:

- 5 Aryle: Hexabrombenzol, bromiertes oligomeres Styrol (BOS), Pentabrommethylbenzol;
- Arylether: Dekabromdiphenylether, Octabromdiphenylether, Poly(2,6-dibrom-1,4-phenylen)ether;
- Arylalkylether: Bis(2,4,6-tribromphenoxy)ethan, Bis(pentabromphenoxy)ethan, Poly(tetrabrombisphenol-A-glycidyl)-ether, Poly(tetrabromhydrochinon-1,2-ethyliden)ether;
- 10 Arylamine: Tris(2,4-dibromphenyl)amin, Bis(pentabromphenyl)amin; Tribromanilin;
- Arylanhydride: Tetrabromphthalsäureanhydrid;
- Arylimide: Tetrabrom: Tetrabromphthalsäureimid;
- Arylalkyl-imide: Ethylen-bis(tetrabromphthalimid);
- Phenole: Tetrabrombisphenol-A;
- 15 Arylsiloxane: Tetrakis(2,4,6-tribromphenyl)siloxan.

Die halogenhaltigen Flammenschutzmittel werden bevorzugt zusammen mit Synergisten wie Antimon-, Wismut- und Phosphorverbindungen eingesetzt. Es können auch halogenfreie Flammenschutzmittel, insbesondere organische Phosphorverbindungen in Kombination mit geringen Mengen an hochfluorierten Polymeren (z.B. PTFE), verwendet werden.

- 20 Bevorzugt eingesetzt werden:

Octabromdiphenylether, DE 79® von Great Lakes, Poly(2,6-dibrom-1,4-phenylen)ether, PO 64 P® von Great Lakes, Poly(tetrabrombisphenol-A-glycidyl)ether, F 2400® von Makhteshim, Ethylenbis-(tetrabromphthalimid), Saytex BT 93® von Saytech und Bis(2,4,6-tribromphenoxy)ethan, Firemaster FF 680® von Great Lakes.

- 25 Besonders bevorzugt ist Poly- bzw. Oligo(tetrabrombisphenol A)-carbonat, BC 52® von Great Lakes und Poly(tetrabrombisphenol-A-glycidyl)ether (F 2400 von Makhteshim) oder teilhalogenierte Polycarbonate (Copolymere).

### 30 Komponente E

- Die erfindungsgemäße Formmasse kann zusätzlich ein weiteres Ppropfmischpolymerisat auf Basis von ABS enthalten, das zum Unterschied von B grobteilig ist und in Masse, Lösung oder Masse-Suspension hergestellt sein kann. Dies wird vorzugsweise in Lösung hergestellt. Die Herstellung ist bekannt und z.B. in der US-PS 4 430 470 hinreichend beschrieben.

- Die Herstellung des Ppropfmischpolymerisats und der Hartphase von E erfolgt gleichzeitig in einem Schritt, wobei eine Ppropfausbeute von 5 bis 30 %, vorzugsweise von 5 bis 20 %, eingestellt wird. Unter Ppropfausbeute wird das Gewichtsverhältnis der tatsächlich aufgepfropften Ppropfmonomeren zu den insgesamt verwendeten Ppropfmonomeren  $\times 100$  verstanden. Hierzu werden 100 Gew.-Teile einer Mischung aus
- 40 mindestens einem vinylaromatischen Monomeren mit 8 bis 12 C-Atomen, MMA oder Mischungen davon und (Meth)acrylnitril oder MMA im Gewichtsverhältnis 50:50 bis 95:5, vorzugsweise 60:40 bis 90:10 und insbesondere 65:35 bis 80:20 in Gegenwart von 3 bis 33 Gew.-Teilen, vorzugsweise 4 bis 21 Gew.-Teilen, insbesondere 6 bis 14 Gew.-Teilen und ganz besonders bevorzugt 6 bis 10 Gew.-Teilen eines Elastomeren in Masse, vorzugsweise zusätzlich in Gegenwart eines inerten Lösungsmittels, oder in Masse-Suspension in
- 45 an sich bekannter Weise polymerisiert, so daß danach der mittlere Teilchendurchmesser der resultierenden Teilchen aus der Ppropfung im Bereich von 0,5 bis 5  $\mu\text{m}$ , vorzugsweise 1,0 bis 2,0  $\mu\text{m}$ , liegt. Bei diesem Prozess entsteht nach Phaseninversion durch Ppropfung und Inklusion eines Teils der Monomeren auf bzw. in das Elastomere das Ppropfmischpolymerisat  $b_{21}$ . Der restliche Anteil der Monomeren bildet die Hartphase von E. Das Massenverhältnis von Elastomer zu aufgepfropftem und inkludiertem Monomeren in beträgt
- 50 4:6 bis 6:4.

Die vinylaromatischen Monomeren sind die gleichen, die auch bei der Herstellung von B Verwendung finden. Vorzugsweise wird lediglich Styrol zusammen mit Acrylnitril angewendet. Als Lösungsmittel kommen z.B. in Frage Cyclohexan oder Alkylaromaten, insbesondere Ethylbenzol.

- Als Elastomeres kommt vorzugsweise Polybutadien mit cis-Gehalten von 30 bis 40 % und 1,2-Vinylgehalten von 7 bis 14 % in Frage. Es können auch Copolymerisate von Butadien mit 15 bis 40 Gew.% aus vinylaromatischen Monomeren, insbesondere Styrol, angewendet werden. Ferner können auch Gemische aus Polybutadien- und Styrol-Butadienblock-Kautschuken angewendet werden. Eine bevorzugte Arbeitsweise zur Herstellung des Ppropfmischpolymerisates ist in der DE-OS 14 95 089 beschrieben.

Die Zusammensetzung der Pfropfhülle von E kann von der von B abweichen. Ferner können die Copolymeren C und die Hartphase von E gleich oder verschieden sein und auch von den Pfropfhüllen abweichen.

5

## Herstellung der Formmasse

10

Das Mischen der Komponenten A, B, C und gegebenenfalls D und E kann nach allen bekannten Methoden erfolgen. Vorzugsweise geschieht jedoch das Mischen der Komponenten A, B, C und gegebenenfalls D und E bei Temperaturen von 200 bis 320 °C durch gemeinsames Extrudieren, Kneten oder Verwalzen der Komponenten, wobei die Komponenten notwendigenfalls zuvor aus der bei der Polymerisation erhaltenen Lösung oder aus der wäßrigen Dispersion isoliert worden sind. Die in wäßriger Dispersion erhaltenen Produkte der Pfropfmischpolymerisation (Komponenten B) kann aber auch teilweise entwässert oder direkt als Dispersion mit der Komponente C vermischt werden. Dabei erfolgt die vollständige

15

Trocknung der Pfropfmischpolymerisate B während des Vermischens. Es ist aber auch möglich, die teilweise entwässerte Komponente B oder deren Dispersion direkt mit C dem Polycarbonat A und der Komponente D und E zu vermischen, wobei dann während des Vermischens die vollständige Trocknung von B erfolgt.

20

Es kann vorteilhaft sein, einzelne Komponenten vorzumischen. Auch das Mischen der Komponenten in Lösung und Entfernen der Lösungsmittel ist möglich.

Die erfindungsgemäße Formmasse kann nach den bekannten Verfahren der Thermoplastverarbeitung bearbeitet werden, also z.B. durch Extrudieren, Spritzgießen, Kalandrieren, Hohlkörperblasen, Pressen oder Sintern. Bevorzugt werden aus den nach dem erfindungsgemäßen Verfahren hergestellten Formmassen durch Spritzgießen Formteile für den Automobilbau hergestellt.

25

Die erfindungsgemäßen Parameter sind wie folgt bestimmt worden:

30

1. die mittlere Teilchengröße und die Teilchengrößenverteilung der in Emulsion hergestellten Elastomerteilchen wird aus der integralen Massenverteilung bestimmt. Bei den mittleren Teilchengrößen handelt es sich in allen Fällen um das Gewichtsmittel der Teilchengrößen, wie sie mittels einer analytischen Ultrazentrifuge entsprechend der Methode von W. Scholtan und H. Lange, Kolloid-Z. und Z.-Polymere 250 - (1972), Seiten 782 bis 796, bestimmt wurden. Diese Messung liefert die integrale Massenverteilung des Teilchendurchmessers einer Probe. Hieraus läßt sich entnehmen, wieviel Gewichtsprozent der Teilchen einen Durchmesser gleich oder kleiner einer bestimmten Größe haben. Der mittlere Teilchendurchmesser, der auch als  $d_{50}$ -Wert der integralen Massenverteilung bezeichnet wird, ist dabei als der Teilchendurchmesser definiert, bei dem 50 Gew.% der Teilchen einen kleineren Durchmesser haben als der Durchmesser, der dem  $d_{50}$ -Wert entspricht. Ebenso haben dann 50 Gew.% der Teilchen einen größeren Durchmesser als der  $d_{50}$ -Wert. Zur Charakterisierung der Breite der Teilchengrößenverteilung der Kautschukteilchen können neben dem  $d_{50}$ -Wert (mittlerer Teilchendurchmesser) die sich aus der integralen Massenverteilung ergebenden  $d_{10}$ - und  $d_{90}$ -Werte herangezogen werden. Der  $d_{10}$ - und  $d_{90}$ -Wert der integralen Massenverteilung sind dabei entsprechend dem  $d_{50}$ -Wert definiert mit dem Unterschied, daß sie auf 10 bzw. 90 Gew.% der

40

Teilchen bezogen sind.

Die mittlere Teilchengröße der Elastomerpartikel der in Lösung hergestellten Komponente E wurde mittels Elektronenmikroskopie bestimmt (Auszählung).

2.

45

a) Die relative Lösungsviskosität  $\eta_{rel.}$  des eingesetzten Polycarbonats (A) wurde in einer 0,5 %igen Lösung in Methylenchlorid bei 23 °C gemessen;

b) Die Viskositätszahl VZ der Komponente C, z.B. der SAN-Copolymerisate, wurde in 0,5 %iger Lösung in Dimethylformamid bei 23 °C bestimmt. Dies gilt auch für die Hartmatrix von E.

50

3. Die Kerbschlagzähigkeit,  $a_K$ , in [kJ/m<sup>2</sup>] der Proben wurde nach DIN 53 453 an bei 260 °C gespritzten Normkleinstäben bei 23 °C gemessen.

4. Die Durchstoßarbeit,  $W_{ges.}$  im Plastechontest (Nm), wurde nach DIN 53 453 an bei 270 °C spritzgegossenen 2 mm dicken Rundscheiben bestimmt. Die Prüfung erfolgte bei Raumtemperatur (23 °C).

5. Der Schmelzindex, MFI, wurde nach DIN 53 735 bei einer Temperatur von 260 °C und 5 kp Belastung ermittelt. (Die Einheit ist g/10 Min.).

55

6. Der B-Wert nach Vicat wurde nach DIN 53 460 bestimmt.

Für die Herstellung erfindungsgemäßer Formmassen und Massen für Vergleichsversuche wurden die



nachfolgend beschriebenen Produkte verwendet. Die in Teilen angegebenen Mengen beziehen sich auf das Gewicht.

## 5 Komponente A

Als Komponente A wurde ein handelsübliches Polycarbonat auf Basis von Bisphenol A mit einer relativen Lösungsviskosität  $\eta_{rel}$  von 1,30 ml/g eingesetzt.

10

## Komponente B

### BI: Ppropfkautschuk 1

15

#### Herstellung der Elastomeren $b_1$ :

Durch Polymerisation von 60 Teilen Butadien in Gegenwart einer Lösung von 0,5 Teilen tert.-  
20 Dodecylmercaptan, 0,7 Teilen Kalium- $C_{14}$ - $C_{18}$ -Alkylsulfonat als Emulgator, 0,2 Teilen Kaliumperoxodisulfat und 0,2 Teilen Natriumpyrophosphat in 80 Teilen Wasser wurde bei 65° C ein Polybutadienlatex hergestellt. Der Umsatz betrug 98 %.

Es wurde ein Polybutadienlatex erhalten, dessen mittlere Teilchengröße bei 0,1  $\mu m$  liegt. Dieser Latex wird durch Zusatz von 25 Teilen einer Emulsion eines Copolymeren aus 96 Teilen Ethylacrylat und 4 Teilen  
25 Acrylsäureamid mit einem Feststoffgehalt von 10 Gew.% agglomeriert, wobei ein Polybutadienlatex mit einer mittleren Teilchengröße von 0,3 bis 0,4  $\mu m$  entstand.

#### Aufpfropfen der 1. Ppropfhülle $b_2$

30

Der agglomerierte Polymerlatex wurde mit Wasser verdünnt, so daß nach vollständiger Polymerisation der Ppropfmonomeren der 1. Ppropfhülle ein Feststoffgehalt von 40 Gew.% resultiert. Nach Zugabe von, jeweils bezogen auf  $b_2$ , 0,75 % Emulgator, 0,5 % Dodecylmercaptan und 0,3 % Kaliumperoxodisulfat wurden 5 % einer Mischung aus n-Butylacrylat und Dihydrodicyclopentadienylacrylat im Gewichtsverhältnis  
35 98:2 langsam zugegeben. Die Polymerisation erfolgte unter Rühren des Ansatzes bei 65° C. Der Umsatz, bezogen auf  $b_2$ , war praktisch quantitativ.

#### Aufpfropfen der 2. Ppropfhülle $b_3$

40

Zu 100 Teilen der nach Aufpfropfen der 1. Schale erhaltenen wäßrigen Dispersion wurden nach Zusetzen von 37 Teilen Wasser und 0,07 Teilen Kaliumperoxodisulfat 24,5 Teile einer Mischung aus Styrol und Acrylnitril im Verhältnis 70:30 innerhalb von 4 Stunden zugeführt. Die Polymerisation erfolgte unter Rühren des Ansatzes bei 75° C. Der Umsatz, bezogen auf Styrol-Acrylnitril war praktisch quantitativ. Die  
45 erhaltene Ppropfkautschukdispersion wurde mittels Calciumchloridlösung gefällt, das abgetrennte Ppropfmischpolymerisat mit destilliertem Wasser gewaschen und im warmen Luftstrom getrocknet.

### B II: Ppropfkautschuk 2

50

Es wurde wie bei der Herstellung von Ppropfkautschuk 1 verfahren, jedoch wurden zum Aufbau der 1. Schale  $b_2$ ) 20 Gew.% einer Mischung aus Ethylhexylacrylat und Allylmethacrylat im Gewichtsverhältnis 99,5 zu 0,5 verwendet und gepropft.

55

### III: Ppropfkautschuk 3

wurde wie Ppropfkautschuk 1 hergestellt, jedoch wurden 30 Gew.%

Butylacrylat/Dihydrocyclopentadienylacrylat im Gewichtsverhältnis 98/2 angewendet.

B IV: Pffropfkautschuk 4 (nicht erfindungsgemäß; zum Vergleich)

5

140 Gew.-Teile Polybutadienlatex b<sub>1</sub> wurden mit 34 Teilen einer Mischung aus Styrol und Acrylnitril (Verhältnis 76:24) und 50 Teilen Wasser gemischt und unter Rühren nach Zusatz von weiteren 0,08 Teilen Kaliumpersulfat und 0,05 Teilen Lauroylperoxid 3 Stunden auf 65 °C erhitzt. Danach wurde das Produkt mittels Calciumchloridlösung bei 95 °C aus der Dispersion gefällt, mit Wasser gewaschen und im warmen

10

B V: Pffropfkautschuk 5 (nicht erfindungsgemäß; zum Vergleich)

15

Wie Pffropfkautschuk 4, jedoch wurden anstelle von 34 Teilen der Mischung aus Styrol und Acrylnitril, 28 Teilen einer Mischung aus Styrol, Acrylnitril und n-Butylacrylat im Gewichtsverhältnis 52:22:26 auf b<sub>1</sub> aufgepfropft.

20

B VI: Pffropfkautschuk 6 (nicht erfindungsgemäß; zum Vergleich)

25

120 Teile des erhaltenen Polybutadien-Latex b<sub>1</sub> wurden mit 23 Teilen einer Mischung aus Styrol und Acrylnitril (Verhältnis 70:30) und 50 Teilen Wasser gemischt und unter Rühren nach Zusatz von weiteren 0,08 Teilen Kaliumpersulfat und 0,05 Teilen Lauroylperoxid 3 Stunden auf 65 °C erhitzt. Nach Beendigung der ersten Stufe der Pffropfpolymerisation wurden ohne weitere Zusatzstoffe 20 Teile Methylmethacrylat während 2 Stunden zugegeben. Die Temperatur betrug während des Zulaufs 65 °C.

Nach Beendigung der Pffropfpolymerisation wurde das Produkt mittels Kalziumchloridlösung bei 95 °C aus der Dispersion gefällt, mit Wasser gewaschen und im warmen Luftstrom getrocknet.

30

Die Aufarbeitung des erhaltenen Pffropfpolymerisates erfolgte jeweils wie unter Pffropfpolymerisat 1 beschrieben.

Komponente C

35

CI: SAN Copolymerisat (S/AN = 75/25) VZ = 87 ml/g.

CII: Copolymerisat aus  $\alpha$ -Methylstyrol und AN im Gewichtsverhältnis 75/25; VZ = 55 ml/g.

Komponente D

40

DI: Es wurde ein aus 10 Gew.% Ethylenoxid und 90 Gew.% Propylenoxid aufgebautes symmetrisches Dreiblockcopolymerisat XYX mit dem Molgewicht 2800 des Mittelblocks als Schmiermittel verwendet. DII: Als weiteres Schmiermittel diente N,N -Bisstearylethylendiamin (Accrawachs).

Komponente E

45

Polybutadien wird in einer Mischung aus Styrol, Acrylnitril und Ethylbenzol gelöst. Das Styrol/Acrylnitril-Verhältnis beträgt 75/25 Gew.%. Die Mischung wird unter starkem Rühren in einem kontinuierlichen Prozeß in drei hintereinander angeordneten Reaktoren mit steigendem Temperaturprofil polymerisiert. Während der Polymerisation polymerisiert ein Teil des Styrol/Acrylnitril-Gemisches auf das Polybutadien und bildet das Pffropfpolymer, während der restliche Anteil das ein Copolymeres (Hartmatrix) bildet. Das Polymerisationsprodukt wurde entgast, extrudiert und anschließend granuliert.

50

Folgende Analysedaten wurden gefunden:

55

9,3 % Polybutadien, 68 % Polystyrol, 22,7 % Acrylnitril. Die Propfausbeute beträgt 8,5 %. Der durch Auszählung der Teilchen auf den elektronenmikroskopischen Aufnahmen bestimmte mittlere Durchmesser beträgt 1,4  $\mu$ m. Somit erhält das Produkt 17 % eines grobteiligen Pffropfkautschuks und 83 % eines Copolymeren mit einer VZ von 84 ml/g.

## Beispiele 1 bis 5 und Vergleichsversuche I bis IV

Die in der Tabelle 1 angegebenen Gewichtsteile der Komponenten A bis E wurden in trockener Form auf einem Fluidmischer gemischt und bei 260 °C auf einen Doppelschneckenextruder, z.B. ZSK-Typ von Werner & Pfleiderer, extrudiert. Aus dem getrockneten Granulat der Proben wurden die Formkörper für die Eigenschaftsprüfungen durch Spritzgießen hergestellt.

Tabelle

10

Beispiel	Komponente							
	A	B		C		D		E
		Art	Menge	Art	Menge	Art	Menge	
1	60	BI:	18	CI:	22	DII	1	-
2	50	BII:	26	CII:	24	-	-	-
3	65	BIII:	16	CI:	19	DII	1	-
4	60	BII:	18	CI:	22	DI	0,75	-
5	60	BI:	10	CI:	15	DII	1	15
Vergleichsversuche								
I <sup>1)</sup>	60	BIV:	18	CII:	22	0.75	-	-
II <sup>2)</sup>	60	BV:	20	CI:	20		-	-
III	60	BVI:	18	CI:	22		-	-
IV	60	BIV:	18	CII:	22	DI	0,75	-
Beispiel	MFT [g/10 min]	a <sub>k</sub> [kJ/m <sup>2</sup> ]	Wg [Nm]	Vicat [°C]				
1	19	30	49	120				
2	16	26	45	120				
3	20	34	58	124				
4	14	32	48	119				
5	24	34	55	120				
Vergleichsversuche								
I	9	33	49	130				
II	10	15	30	116				
III	8	32	47	120				
IV	12	33	-	127				

15

20

25

30

35

1) gemäß der Lehre der DE-OS 18 10 993

2) gemäß der Lehre der DE-OS 34 14 119

Wie aus dem Vergleich zu erkennen ist, führt der erfindungsgemäße Schalenaufbau der Ppropfkautschuke zu Formmassen mit gegenüber den Vergleichsmassen verbesserter Fließfähigkeit und gleichzeitig guter Zähigkeit.

## Ansprüche

1. Thermoplastische Formmasse mit verbesserter Fließfähigkeit, enthaltend, jeweils bezogen auf die Formmasse aus A, B und C,

A) 20 bis 85 Gew.% eines thermoplastischen aromatischen Polycarbonats,

B) 5 bis 50 Gew.% eines Ppropfpolymerisats aus

b<sub>1</sub>) mindestens einem Elastomeren (Kautschuk), das mindestens 40 Gew.%, bezogen auf B ausmacht und eine mittlere Teilchengröße, bestimmt als d<sub>50</sub>-Wert der integralen Masseverteilung, im Bereich von 50 bis 700 nm aufweist,

wobei das Elastomere b<sub>1</sub>) einpolymerisiert enthält, jeweils bezogen auf b<sub>1</sub>),

b<sub>1a1</sub>) 50 bis 100 Gew.% mindestens eines Diens aus der Gruppe der konjugierten Diene mit 4 oder 5 C-Atomen,

b<sub>1a2</sub>) 0 bis 50 Gew.% mindestens eines Monomeren aus der Gruppe der Alkylacrylate oder Alkylmethacrylate mit 1 bis 8 C-Atomen im Alkylrest oder Styrol oder Acrylnitril

5 und

b<sub>2</sub>) einer ersten, auf das Elastomere gepfropften Hülle, die, bezogen auf B, 1 bis 40 Gew.%, ausmacht, sowie

b<sub>3</sub>) sowie einer weiteren darauf aufpolymerisierten Hülle, die, bezogen auf B, 20 bis 50 Gew.% ausmacht,

C) 5 bis 70 Gew.% eines thermoplastischen Copolymerisats aus, jeweils bezogen auf C,

10 c<sub>1</sub>) 50 bis 95 Gew.% Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, kernsubstituiertem Styrol und/oder Methylmethacrylat und

c<sub>2</sub>) 50 bis 5 Gew.% (Meth)Acrylnitril, Methylmethacrylat, Maleinsäureanhydrid und/oder N-substituiertem Maleinimid,

dadurch gekennzeichnet, daß die 1. Pfropfhülle b<sub>2</sub>) aufgebaut ist aus, jeweils bezogen auf b<sub>2</sub>)

15 b<sub>2a1</sub>) 45 bis 99,99 Gew.% mindestens eines Alkylacrylats oder Alkylmethacrylats mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen im Alkylrest

b<sub>2a2</sub>) 0 bis 50 Gew.% mindestens eines copolymerisierbaren olefinisch ungesättigten Monomeren und

b<sub>2a3</sub>) 0,01 bis 5 Gew.% eines copolymerisierbaren, polyfunktionellen, vernetzenden Monomeren und ferner die weitere Pfropfhülle b<sub>3</sub>) aufgebaut ist aus, jeweils bezogen auf b<sub>3</sub>),

20 b<sub>3a1</sub>) 50 bis 95 Gew.% Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, kernsubstituiertem Styrol und/oder Methylmethacrylat und

b<sub>3a2</sub>) 50 bis 5 Gew.% (Meth)Acrylnitril, Methylmethacrylat, Maleinsäureanhydrid und/oder N-substituiertem Maleinimid.

25 2. Thermoplastische Formmasse nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß sie 30 bis 70 Gew.% A, 10 bis 35 Gew.% B und 10 bis 40 Gew.% C enthält.

3. Thermoplastische Formmasse nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß, jeweils bezogen auf B,

das Elastomere b<sub>1</sub>) 40 bis 65 Gew.%

die erste Hülle b<sub>2</sub>) 2 bis 25 Gew.% und

30 die zweite Hülle b<sub>3</sub>) 30 bis 50 Gew.% ausmacht.

4. Thermoplastische Formmasse nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Elastomere b<sub>1</sub>) ausschließlich Butadien einpolymerisiert enthält und als Pfropfmonomere b<sub>2a1</sub>) der 1. Hülle Ethylacrylat, Butylacrylat, und/oder Ethylhexylacrylat verwendet werden.

35 5. Thermoplastische Formmasse nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß als Pfropfmonomere zum Aufbau der weiteren Hülle b<sub>3</sub> eine Mischung aus Styrol (b<sub>3a1</sub>) und Acrylnitril (b<sub>3a2</sub>) verwendet werden.

6. Formmasse nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß sie, bezogen auf 100 Gew.-Teile A + B + C, 0,1 bis 40 Gew.-Teile übliche Zusatzstoffe (Komponente D) aufweist.

7. Formmasse nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß als Zusatzstoff N,N'-Bisstearylethylendi-  
40 amin (Accrawachs) in Mengen von 0,1 bis 2,5 Gew.-Teilen verwendet wird.

8. Verfahren zur Herstellung einer Formmasse gemäß Anspruch 1 durch an sich bekanntes Mischen der Komponenten A, B und C.

9. Verwendung der Formmasse gemäß Anspruch 1 zur Herstellung von Formteilen.

45

50

55

DERWENT-ACC-NO: 1989-229029

DERWENT-WEEK: 198934

*COPYRIGHT 2008 DERWENT INFORMATION LTD*

TITLE: Thermoplastic moulding materials with improved flow properties comprise polycarbonate, graft copolymer with 2 copolymer shells grafted onto polydiene elastomer, and styrene/acrylonitrile copolymer

INVENTOR: BRANDT H; MUHLBACH K ; RUPPMICH K

PATENT-ASSIGNEE: BASF AG[BADI]

PRIORITY-DATA: 1988DE-3803458 (February 5, 1988)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO	PUB-DATE	LANGUAGE
EP 326979 A	August 9, 1989	DE
DE 3803458 A	August 17, 1989	DE

DESIGNATED-STATES: BE DE FR GB NL

APPLICATION-DATA:

PUB-NO	APPL-DESCRIPTOR	APPL-NO	APPL-DATE
EP 326979A	N/A	1989EP-101500	January 28, 1989
DE 3803458A	N/A	1988DE-3803458	February 5, 1988

INT-CL-CURRENT:

TYPE	IPC DATE
CIPS	C08L69/00 20060101

ABSTRACTED-PUB-NO: EP 326979 A

BASIC-ABSTRACT:

Thermoplastic moulding materials with improved flow (I) comprise 20-85 wt % thermoplastic aromatic polycarbonate (A), 5-50 wt% graft copolymer (B) of 40 wt% elastomer (b1) with d50 50-700 nm derived from 50-100 wt% conjugated 4-5C diene(s) (b1a1) and 0-50 wt% 1-8C alkyl (meth)acrylate or styrene or acrylonitrile, with a first grafted shell (b2) (1-40 wt% w.r.t. B) and a sec. grafted shell (b3) (20-50 wt% w.r.t. B), and 5-70 wt% thermoplastic copolymer (C) of 50-95 wt% styrene, alpha- or ring-susbt'd. styrene, or MMA (c1) and 50-5 wt% (meth)acrylonitrile, MMA, maleic anhydride or N-substd. maleimide (c2); the novelty is that (b2) is derived from 45-99.99 wt% 1-8C alkyl (meth)acrylate(s), 0-50 wt% olefinic comonomer (b2a2) and 0.01-5 wt% polyfunctional crosslinking comonomer (b2a3), and the other shell (b3) is derived from 50-95 wt% monomers as in (c1) (b3a1) and 50-5 wt% monomers as in (c2) (b3a2).

(I) are produced by mixing (A), (B) and (C).

USE/ADVANTAGE - (I) are useful esp. for the prodn. of injection-moulded parts for motor vehicles. (I) have a combination of toughness and improved flow properties w.r.t. prior-art PC/ABS mixts.

TITLE-TERMS: THERMOPLASTIC MOULD MATERIAL IMPROVE FLOW  
PROPERTIES COMPRISE POLYCARBONATE GRAFT  
COPOLYMER SHELL POLYDIENE ELASTOMER  
POLYSTYRENE POLYACRYLONITRILE

DERWENT-CLASS: A18 A23

CPI-CODES: A04-B01B; A04-C01A; A04-D01; A04-F05; A04-F06B; A05-E06A; A09-A; A09-A05A; A11-B12A; A12-T04;

POLYMER-MULTIPUNCH-CODES-AND-KEY-SERIALS:

Key Serials: 0003 0009 0031 0038 0218 0226 0306 0307 0313 0320  
 0355 0376 0377 0383 0495 0496 0502 0503 0530 0531  
 0537 0538 0544 0545 0551 0552 0558 0559 0565 0566  
 0572 0573 0579 0580 0593 0594 0622 1093 1100 1114  
 1173 1292 1373 1417 2121 2122 2123 2239 2386 2465  
 2504 2545 2560 2562 2617 2726 2829 3006 3007 3013  
 3014 3020 3021 3027 3028 3034 3035 3041 3042 3067  
 3160 3243 3300

Multipunch Codes: 02& 032 034 037 040 051 055 056 072 074 076 077 081  
 082 083 084 086 092 098 117 122 123 125 130 133 143  
 145 155 157 158 220 221 27& 273 28& 329 33- 393 397  
 400 402 408 409 42& 436 437 443 456 461 476 477 51&  
 512 514 551 556 57& 672 679 688 729 02& 032 034 037  
 040 051 055 056 072 074 076 077 081 082 083 084 086  
 092 098 104 105 106 117 122 123 125 130 133 143 145  
 155 157 158 220 221 27& 273 28& 329 33- 393 397  
 400 402 408 409 42& 436 437 443 456 461 476 477 51&  
 512 514 551 556 57& 672 679 688 729 02& 032 034 037  
 040 051 055 056 057 072 074 076 077 081 082 083 084  
 086 092 098 117 122 123 125 130 133 143 145 155 157  
 158 220 221 27& 273 28& 329 33- 393 397 400 402 408  
 409 42& 436 437 443 456 461 476 477 51& 512 514 551  
 556 57& 672 679 688 729 02& 032 034 037 040 051 055  
 056 057 072 074 076 077 081 082 083 084 086 092 098  
 117 122 123 125 130 133 143 145 155 157 158 220 221  
 27& 273 28& 329 33- 393 397 400 402 408 409 42& 436  
 437 443 456 461 476 477 51& 512 514 551 556 57& 672  
 679 688 729 02& 032 034 037 040 051 055 056 057 072  
 074 076 077 081 082 083 084 086 092 098 104 105 106  
 117 122 123 125 130 133 143 145 155 157 158 220 221  
 27& 273 28& 329 33- 393 397 400 402 408 409 42&  
 436 437 443 456 461 476 477 51& 512 514 551 556 57&  
 672 679 688 729 02& 032 034 037 040 051 055 056 058  
 072 074 076 077 081 082 083 084 086 092 098 117 122  
 123 125 130 133 143 145 155 157 158 220 221 27& 273  
 28& 329 33- 393 397 400 402 408 409 42& 436 437 443  
 456 461 476 477 51& 512 514 551 556 57& 672 679 688  
 729 02& 032 034 037 040 051 055 056 058 072 074 076  
 077 081 082 083 084 086 092 098 117 122 123 125 130  
 133 143 145 155 157 158 220 221 27& 273 28& 329 33-  
 393 397 400 402 408 409 42& 436 437 443 456 461 476  
 477 51& 512 514 551 556 57& 672 679 688 729 02& 032  
 034 037 040 051 055 056 058 072 074 076 077 081 082  
 083 084 086 092 098 104 105 106 117 122 123 125 130  
 133 143 145 155 157 158 220 221 27& 273 28& 329

33- 393 397 400 402 408 409 42& 436 437 443 456 461  
476 477 51& 512 514 551 556 57& 672 679 688 729 02&  
032 034 037 040 051 055 056 059 072 074 076 077 081  
082 083 084 086 092 098 117 122 123 125 130 133 143  
145 155 157 158 220 221 27& 273 28& 329 33- 393 397  
400 402 408 409 42& 436 437 443 456 461 476 477 51&  
512 514 551 556 57& 672 679 688 729 02& 032 034 037  
040 051 055 056 059 072 074 076 077 081 082 083 084  
086 092 098 117 122 123 125 130 133 143 145 155 157  
158 220 221 27& 273 28& 329 33- 393 397 400 402 408  
409 42& 436 437 443 456 461 476 477 51& 512 514 551  
556 57& 672 679 688 729 02& 032 034 037 040 051 055  
056 059 072 074 076 077 081 082 083 084 086 092 098  
104 105 106 117 122 123 125 130 133 143 145 155 157  
158 220 221 27& 27- 273 28& 329 33- 393 397 400 402  
408 409 42& 436 437 443 456 461 476 477 51& 512 514  
551 556 57& 672 679 688 729

SECONDARY-ACC-NO:

CPI Secondary Accession Numbers: 1989-101603